

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

REC'D 30 MAY 2005

PCT

WIPO

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)



Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts O.Z. 6138-WO	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/11773	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 24.10.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 12.12.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07F19/00		
Anmelder OXENO OLEFINCHEMIE GMBH et al.		

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
 - ☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 4 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Bescheids
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☒ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 10.04.2004	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 31.05.2005
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt - P.B. 5818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk - Pays Bas Tel. +31 70 340 - 2040 Tx: 31 651 epo nl Fax: +31 70 340 - 3016	Bevollmächtigter Bediensteter Rinkel, L Tel. +31 70 340-2834 

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

Beschreibung, Seiten

1-23 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

1-9 eingegangen am 22.01.2004 mit Schreiben vom 20.01.2004

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/11773

Zu Punkt V

Begründete Feststellung hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Es wird auf das folgende Dokument verwiesen:

D1: JACKSTELL, RALF ET AL., JOURNAL OF MOLECULAR CATALYSIS A: CHEMICAL (2002), 185(1-2), 105-112, 2002

2. Anspruch 9, wie erklärt im schriftlichen Bescheid mit Absendedatum 13.01.2005, ist einheitlich mit Ansprüchen 1-8 nur insoweit dieser Anspruch sich bezieht auf die Herstellung von Komplexen von Metallen. Insoweit Anspruch 9 sich bezieht auf die Verwendung dieser Metallkomplexe, gehört er zu einer zweiten Erfindung. In der weiteren Prüfung wird Anspruch 9 interpretiert als gehörend zur ersten Erfindung, nämlich: Ansprüche 1-8 : Verfahren zur Herstellung von Carbenliganden enthaltenden Metallkomplexen.

3. Das Dokument D1 wird als nächstliegender Stand der Technik gegenüber dem Gegenstand des Anspruchs 1 angesehen. Es offenbart ein Verfahren zur Herstellung von Metall-Carben-Komplexen.

Der Gegenstand des Anspruchs 1 unterscheidet sich daher vom bekannten Verfahren dadurch, daß andere Edukte verwendet werden: In D1 erfolgt die Herstellung der Metall-Carben-Komplexe durch Umsetzen einer Verbindung eines Metall mit einem Imidazoliumsalz. Gemäss dem erfindungsgemässen Verfahren wird statt dem Imidazoliumsalz eine Verbindung der Formel (II) oder (III) eingesetzt.

Der Gegenstand des Anspruchs 1 ist somit neu (Artikel 33(2) PCT).

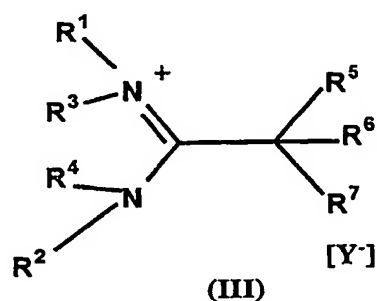
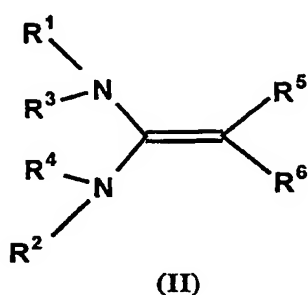
Die mit der vorliegenden Erfindung zu lösende Aufgabe kann somit darin gesehen werden, daß ein weiteres Verfahren zur Herstellung von Metall-Carben-Komplexen zur Verfügung gestellt wird.

Die in Anspruch 1 der vorliegenden Anmeldung für diese Aufgabe vorgeschlagene Lösung beruht aus den folgenden Gründen auf einer erfinderischen Tätigkeit (Artikel 33(3) PCT):
Das erfindungsgemässe Verfahren ist weit entfernt von dem in D1 offenbarten Verfahren, und es sind keine Hinweise für den Fachman vorhanden, das in D1 offenbarten Verfahren so zu ändern, um zum erfindungsgemässen Verfahren zu kommen.

Die Ansprüche 2-9 sind vom Anspruch 1 abhängig und erfüllen damit ebenfalls die Erfordernisse des PCT in bezug auf Neuheit und erfinderische Tätigkeit.

Patentansprüche:

1. Verfahren zur Herstellung von Komplexen von Metallen der 6. bis 10. Gruppe des Periodensystems der Elemente durch Umsetzen einer Verbindung eines Metalls der 6. bis 10. Gruppe des Periodensystems der Elemente mit Verbindungen der Formel II und/oder III

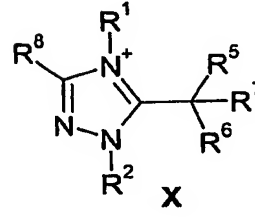
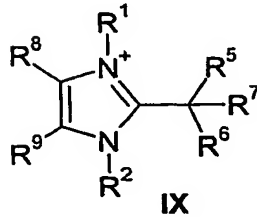
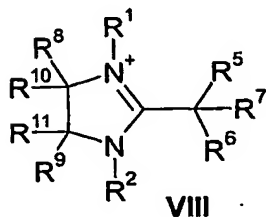
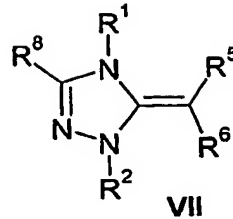
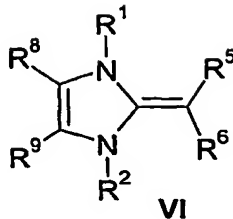
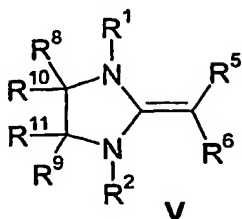


wobei R^1, R^2, R^3, R^4 gleich oder verschieden, für lineare, verzweigte, substituierte oder unsubstituierte cyclische oder alicyclische Alkylgruppen mit 1 bis 24 Kohlenstoffatomen; substituierte oder unsubstituierte, mono- oder polycyclische Arylgruppen mit 6 bis 24 Kohlenstoffatomen; mono- oder polycyclische, substituierte oder unsubstituierte Heterocyclen mit 2 bis 24 Kohlenstoffatomen; ein Heteroatom aus der Gruppe N, O, S stehen und R^3, R^4 eine kovalente Bindung aufweisen können

R^5, R^6, R^7 gleich oder verschieden für H, lineare, verzweigte, substituierte oder unsubstituierte cyclische oder alicyclische Alkylgruppen mit 1 bis 24 Kohlenstoffatomen; substituierte oder unsubstituierte, mono- oder polycyclische Arylgruppen mit 6 bis 24 Kohlenstoffatomen stehen können, mit der Maßgabe, dass der Substituent R^7 nicht für H steht.

2. Verfahren nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,

dass als Verbindungen der Formeln II oder III Verbindungen der allgemeinen Formeln V bis X



eingesetzt werden, wobei

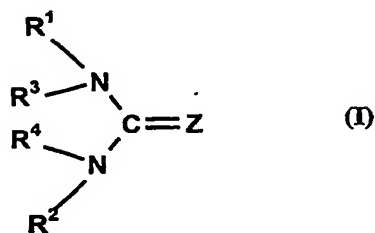
R^1, R^2, R^5, R^6, R^7 die genannten Bedeutungen und

R^8, R^9, R^{10}, R^{11} gleich oder verschieden für H stehen oder eine der Bedeutungen von R^1 besitzen.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2,

dadurch gekennzeichnet,

das Komplexe der allgemeinen Formel I



hergestellt werden, wobei [Z] für ein Metallkomplexfragment der allgemeinen Formel



steht, und

M: Metalle der Gruppen 6 bis 10 des Periodensystems der Elemente

L: ein oder mehrere, gleiche oder verschiedene ein oder mehrzählige geladene oder ungeladene Liganden

A: einfach geladenes Anion oder das chemische Äquivalent eines mehrfach geladenen Anions,

5 b: ganze Zahl von 1 bis 3

a: ganze Zahl von 0 bis $5 \times b$

n: ganze Zahl von 0 bis 6

bedeutet und R^1 , R^2 , R^3 , R^4 die genannten Bedeutungen besitzt.

10 4. Verfahren nach Anspruch 3,

dadurch gekennzeichnet,

dass L in der allgemeinen Formel (XI) für Wasserstoff, das Wasserstoff-Ion, Halogene, Halogen-Ionen, Pseudohalogenide, Carboxylat-Ionen, Sulfonat-Ionen, Amidreste, Alkylgruppen, Alkylarylgruppen, Arylgruppen, Heteroarylgruppen, Alkenylgruppen, 15 Alkoholatreste, Nitrile, Isonitrile, Mono- oder Diolefine, Alkine, π -Aromatenreste, Cyclopentadienyl, Indenyl, Phosphine, Phosphite, Phosphinite, Phosphonite, Phosphoraromaten, Acetylacetonat, Kohlenmonoxid, Stickstoffmonoxid oder Carbenliganden steht,

wobei die Alkylgruppen 1 bis 24, die Alkenyl- und Heteroarylgruppen 2 bis 24 und die 20 Aryl- und Alkylarylgruppen 5 bis 24 Kohlenstoffatome beinhalten und jeweils substituiert oder unsubstituiert sein können.

5. Verfahren nach Anspruch 3,

dadurch gekennzeichnet,

25 dass A in der allgemeinen Formel (XI) für Halogenid, Pseudohalogenid, Tetraphenylborat, Tetrafluoroborat, Tetrachloroborat, Hexafluorophosphat, Hexafluoroantimonat, Tetracarbonylcobaltat, Hexafluoroferrat, Tetrachloroferrat, Tetrachloroaluminat, Triflat, Bistrifluorsulphonylamid, Heptachlorodialuminat, Tetrachloropalladat, Sulfat, Hydrogensulfat, Nitrat, Nitrit, Phosphat, Hydrogenphosphat, Dihydrogenphosphat, 30 Hydroxid, Carbonat, Hydrogencarbonat, Salze von aromatischen oder aliphatischen Carbonsäuren, Salze von aromatischen oder aliphatischen Sulfonsäuren oder Phenolate steht.

6. Verfahren nach Anspruch 1 bis 5,

dadurch gekennzeichnet,

dass als Metall der Gruppen 6 bis 10 des Periodensystems Ru, Rh, Ni, Pd oder Pt eingesetzt wird.

5

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6,

dadurch gekennzeichnet,

dass die Metallkomplexe (I) aus den Verbindungen II bis X und einem Metall der Gruppen 6 bis 10 des Periodensystems in situ als Katalysatoren oder Katalysatorprecursoren in Hydroformylierungen, Hydrierungen, Arylaminierungen, Hydrosilylierungen, Heck-Reaktionen, Suzuki-Kupplungen, Kumada-Kupplungen, Stille-Kupplungen, Miyaura-Kupplungen, Sonogashira-Kupplungen, Olefinmetathesen, Cyclopropanierungen, Reduktionen von Halogenarenen, Polymerisationen oder Telomerisationsreaktionen hergestellt werden.

10

15

8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7,

dadurch gekennzeichnet,

dass eine oder mehrere der Verbindungen II bis X in einem Verhältnis von 1 bis 100 Mol zum Metall der 6. bis 10. Gruppe des Periodensystems eingesetzt werden.

20

9. Verwendung der Verbindungen II und/oder III als Ligandprecursoren in Hydroformylierungen, Hydrierungen, Arylaminierungen, Hydrosilylierungen, Heck-Reaktionen, Suzuki-Kupplungen, Kumada-Kupplungen, Stille-Kupplungen, Miyaura-Kupplungen, Sonogashira-Kupplungen, Olefinmetathesen, Cyclopropanierungen, Reduktionen von Halogenarenen, Polymerisationen oder Telomerisationsreaktionen.

25

Translation

TENT COOPERATION TREATY

PCT/EP2003/011773



PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference O.Z. 6138-WO	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP2003/011773	International filing date (day/month/year) 24 October 2003 (24.10.2003)	Priority date (day/month/year) 12 December 2002 (12.12.2002)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C07F 19/00, 15/00, 15/04, B01J 31/00, C07B 61/00		
Applicant OXENO OLEFINCHEMIE GMBH		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 5 sheets, including this cover sheet.

☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 4 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☒ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 10 April 2004 (10.04.2004)	Date of completion of this report 31 May 2005 (31.05.2005)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International Application No.

PCT/EP2003/011773

I. Basis of the report

1. With regard to the elements of the international application:*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:
pages _____ 1-23 _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☒ the claims:
pages _____, as originally filed
pages _____, as amended (together with any statement under Article 19
pages _____, filed with the demand
pages _____ 1-9 _____, filed with the letter of _____ 20 January 2004 (20.01.2004)
- ☐ the drawings:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the sequence listing part of the description:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International Application No.

PCT/EP2003/011773

IV. Lack of unity of invention

1. In response to the invitation to restrict or pay additional fees the applicant has:

- ☐ restricted the claims.
- ☐ paid additional fees.
- ☐ paid additional fees under protest.
- ☐ neither restricted nor paid additional fees.

2. ☒ This Authority found that the requirement of unity of invention is not complied with and chose, according to Rule 68.1, not to invite the applicant to restrict or pay additional fees.

3. This Authority considers that the requirement of unity of invention in accordance with Rules 13.1, 13.2 and 13.3 is

- ☐ complied with.
- ☐ not complied with for the following reasons:

4. Consequently, the following parts of the international application were the subject of international preliminary examination in establishing this report:

- ☐ all parts.
- ☐ the parts relating to claims Nos. _____

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1 - 9	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1 - 9	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1 - 9	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations**1. Reference is made to the following document:**

D1: JACKSTELL, RALF ET AL., JOURNAL OF MOLECULAR
CATALYSIS A: CHEMICAL (2002), 185(1-2), 105-
112, 2002

2. Claim 9, as is explained in the written opinion dated 13 January 2005, exhibits unity of invention with claims 1 to 8 only insofar as said claim relates to the production of complexes of metals. Insofar as claim 9 relates to the use of these metal complexes, it belongs to a second invention. In the further examination, claim 9 is interpreted as belonging to the first invention, namely: Claims 1-8: method for producing metal complexes containing carbene ligands.

3. D1 is considered prior art closest to the subject matter of claim 1. D1 discloses a method for producing metal-carbene complexes.

The subject matter of claim 1 differs therefore from the known method in that other educts are used: in D1 the metal-carbene complexes are produced by reacting a compound of a metal with an imidazolium salt. According to

the method as per the invention, a compound of the formula (II) or (III) is used instead of the imidazolium salt.

The subject matter of claim 1 is therefore novel (PCT Article 33(2)).

The problem addressed by the present invention can therefore be seen as that of providing a further method for producing metal-carbene complexes.

The solution to this problem proposed in claim 1 of the present application involves an inventive step (PCT Article 33(3)) for the following reasons:

The inventive method is far removed from the method disclosed in D1, and there is nothing to suggest to a person skilled in the art that the method disclosed in D1 be changed so as to arrive at the method as per the invention.

Claims 2 to 9 are dependent on claim 1 and therefore likewise meet the PCT requirements of novelty and inventive step.